

## 明 細 書

## 徐放性フェロモン製剤

## 技術分野

- [0001] この発明は、徐放性フェロモン製剤に関し、さらに詳しくは、環境を汚染することがなく、しかも徐放性を制御することのできる、農業用害虫防除剤として有用な徐放性フェロモン製剤に関する。

## 背景技術

- [0002] 現在、開発されている農薬のほとんどは有機合成物質であり、これら物質を目的に合わせて製剤化して使用されている。しかし、近年、環境に対する意識が高まり、農薬散布の安全性については、さまざまな議論がなされている。
- [0003] 最近でこそ、人畜や環境に対する負荷については飛躍的な改善がなされているものの、農作物に直接撒布する薬剤が主流であり、薬剤の作物残留、土壌への残留、河川への流出等が危惧され、根本的な改善に至っていないのが現状である。
- [0004] さらには、農薬の影響として、殺虫剤に抵抗性を獲得した害虫の難防除化、殺虫剤の多用による二次害虫の出現等が見られ、殺虫剤撒布を主体とする害虫の防除以外の防除手段を求める声が高まってきている。
- [0005] このような状況下、最近では、生産性を維持、向上させつつ環境への負荷の軽減を配慮した「環境保全型農業」が、国、県および関係団体によって推進されてきており、農薬散布のみに頼る害虫防除ではなく、環境に負荷のかかりにくい様々な資材と組み合わせることにより害虫防除を行うという総合防除の重要性が提唱されるようになった。
- [0006] 具体的には、天敵、昆虫フェロモン等の環境に対する負荷の少ない生物的防除資材の組み合わせによる害虫防除法が検討されるようになり、これらが農薬登録され、実用化されてきている。現在、直接、害虫防除に使用されている昆虫フェロモンは、ほとんどが性フェロモンであり、集合フェロモン、警戒フェロモン等の応用についても研究がなされているが、未だ実用には至っていない。
- [0007] 前記性フェロモンは、非常に少ない量で活性を示し、同種類間の害虫にしか効果

を奏せず、炭素、水素および酸素からなる比較的単純な化合物であるため、安全性が高く、残留の心配がない等の特長があり、この性フェロモンを利用した害虫防除法は、前記の総合防除や環境保全型農業の目的に合致した害虫防除法である。

[0008] 性フェロモンを用いた害虫防除剤としての使用方法は、交信攪乱法と大量誘殺法との二つの方法に大別することができ、昆虫および農作物の種類により使い分けされ、種々の性フェロモン害虫防除剤が実用化されている(例えば、非特許文献1参照)。

[0009] 非特許文献1:社団法人日本植物防疫協会、平成12年2月29日発行「フェロモン剤利用ガイド」p1およびp101

[0010] 交信攪乱法は、害虫が放出する性フェロモンと同じ成分またはその成分の一部を、一定量以上、かつ継続的に空気中に放出することにより、性フェロモンを頼りに雌を探す雄の行動を邪魔して、交尾を阻害する方法である。現在、この交信攪乱剤としては、ポリエチレンチューブ内に性フェロモン成分を封印し、チューブから性フェロモン成分を放出させる製剤が主流をなす。

[0011] 前記のように、交信攪乱剤は、一定期間、一定量以上のフェロモンが放出されることが重要であるが、現在、市販されている交信攪乱剤は、気温の影響を受け易く、特に夏場の高温時には必要以上に性フェロモンが放出されてしまうという欠点がある。つまり、防除が必要な期間途中において、チューブ内の性フェロモンが不足し、または完全に消失する場合も起こり、効果のバラツキまたは効果の喪失を生じることとなる。

[0012] このような事態は、使用期間が長期に亘る場合が多い交信攪乱剤においては、非常に重要な問題となっている。さらには、チューブ製剤は、農耕地において簡単に設置できるようにするため、チューブと針金とを組み合わせたものが多く、使用後にそのまま放置すると環境汚染の問題を生じる。このため、回収の手間が必要となり、農業従事者に多大の労力と時間とを負わすという問題もあった。

[0013] 大量誘殺法は、性フェロモンが有する強力な誘引力を利用して大量の雄を誘引し、殺虫剤等を用いて殺虫する方法である。この製剤としては、ポリエチレンチューブ、ゴムボードまたは木製ボード等に性フェロモンまたは性フェロモンと殺虫成分(農薬)と

の混合物から成る製剤が実用化されている。しかしながら、前記交信攪乱製剤と同様の問題を抱えていた。

- [0014] 大量誘殺法に用いる殺虫剤としては、昆虫を効率的に誘引し防除すると共に、環境に及ぼす影響の少ない農園芸用殺虫剤組成物として、天然のフェロモンと殺虫活性成分とを小粒で球形の鉱物系資材に含有させた農園芸用誘引殺虫剤組成物が提案されている(例えば、特許文献1特許請求の範囲)。

- [0015] 特許文献1:特開2001-72506号公報

- [0016] この農園用誘引殺虫剤組成物は、風雨などの気象条件によって、薬剤の散布状態が不均一となること、また、風雨によって散布した薬剤が流失または土中に吸い込まれて、散布後、短時間のうちにその効果が減衰するなどの問題点が解消された誘引殺虫剤組成物であるが、性フェロモンの徐放性についてはなんら言及されていない。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0017] この発明は、前記交信攪乱製剤における問題点を解消し、気温の影響を受けることなく、一定の割合で性フェロモンを放出することができ、使用後に回収する手間を要せず、しかも環境を汚染することのない徐放性フェロモン製剤を提供することをその課題とする。

課題を解決するための手段

- [0018] 本発明者らは、前記の課題を解決するために、性フェロモンを含有させる基材に着目して研究を重ねた結果、この基材として結晶性鉱物を用いることによって、前記の課題が解決できるということを見出し、この知見に基づいてこの発明を完成するに至った。

- [0019] すなわち、前記課題を達成するためのこの発明の手段は、  
結晶性鉱物にフェロモンを含有させて成ることを特徴とする徐放性フェロモン製剤である。

- [0020] この発明の手段における好ましい態様としては、下記(1)～(3)の徐放性フェロモン製剤を挙げることができる。

(1)前記結晶性鉱物が、結晶性粘土鉱物である徐放性フェロモン製剤。

(2)前記フェロモンが、天然フェロモンおよび／または合成フェロモンである徐放性フェロモン製剤。

(3)前記フェロモンの含有量が、前記結晶性鉱物と前記フェロモンとの合計質量に対して、1〜30質量%である徐放性フェロモン製剤。

### 発明の効果

- [0021] この発明によれば、性フェロモンを含有させる基材として結晶性鉱物を用いるため、その結晶格子内にフェロモンが包摂されると考えられ、気温の影響を受けることなく、一定の割合で性フェロモンを放出することができ、また、結晶性鉱物自体が風化されて有用な土壌に帰するので、使用後に回収する手間を要せず、しかも環境を汚染することのない徐放性フェロモン製剤が提供され、農地、山地、ゴルフ場などにおける害虫防除に寄与するところはきわめて多大である。

### 図面の簡単な説明

- [0022] [図1]図1は実施例1〜2で製造された製剤中のフェロモン残存率を示す図である。  
[図2]図2は実施例3〜5で製造された製剤中のフェロモン残存率を示す図である。  
[図3]図3は実施例6で製造され、比較例1で用意したコナガ用交信攪乱剤中のフェロモン(Z-11-16AC)残存率を示す図である。  
[図4]図4は実施例6で製造され、比較例1で用意したコナガ用交信攪乱剤中のフェロモン(Z-11-16AL)残存率を示す図である。  
[図5]図5は実施例7で製造され、比較例2で用意したオキナワカンシャクシコメツキ用誘引剤中のフェロモン揮散量を示す図である。  
[図6]図6は実施例8で製造され、比較例3で用意したコナガ用交信攪乱剤中のフェロモン(Z-11-16AC)残存率を示す図である。  
[図7]図7は実施例8で製造され、比較例3で用意したコナガ用交信攪乱剤中のフェロモン(Z-11-16AL)残存率を示す図である。

### 発明を実施するための最良の形態

- [0023] この発明の徐放性フェロモン製剤は、結晶性鉱物にフェロモンを含有させて成る。この発明において用いる結晶性鉱物としては、結晶構造を有する鉱物である限り特に制限はないが、結晶性粘土鉱物が好ましく、この結晶性粘土鉱物としては、セピオ

ライト、パリゴルスカイト、カオリオナイト、ハロイサイト、メタハロイサイト、イライト、パーミキュライト、モンモリロナイト、ビーデライト、ノントロナイト、サポナイト、クロライト、アタパルジャイト、ゼオライト、ギブサイト、ヘマタイト、ゲータイト、リモナイト、およびピロルサイトなどを挙げることができる。これら結晶性粘土鉱物は、天然鉱物または合成鉱物のいずれであってもよい。結晶性鉱物の中でも繊維状の形態をした複鎖状構造型の粘土鉱物、板状の形態をした2:1型の粘土鉱物及びシリカが好ましく、さらには、セピオライト、パリゴルスカイトおよびモンモリロナイトが特に好ましい。

[0024] この発明に用いるフェロモンとしては、昆虫由来のフェロモン及びそのフェロモンと同じ分子構造を有するところの合成されたフェロモンであれば特に制限はなく、天然フェロモンと合成フェロモンとを挙げることができる。この天然フェロモンは、動物の体内で生産され、体外に分泌されて同種他個体に種々の作用を発揮するフェロモンである。合成フェロモンは、天然フェロモンと同じ化学構造またはこれに類似する化学構造を有して、天然フェロモンと実質的に同じ作用を発揮する人工合成された化学物質である。

[0025] このような天然フェロモンまたは合成フェロモンとしては、アセテート系化合物、アルデヒド系化合物、アルコール系化合物、その他の化合物が挙げられ、具体的には、アセテート系化合物として、テトラデシルアセテート、10-メチルドデシルアセテート、11-ドデセニルアセテート、メチルフェニルアセテート、フェニルエチルプロピオネート、(Z)-5-デセニルアセテート、(Z)-7-デセニルアセテート、(E)-8-デセニルアセテート、(Z)-9-デセニルアセテート、(Z)-9-ヘキサデセニルアセテート、(Z)-9-テトラデセニルアセテート、(Z)-10-テトラデセニルアセテート、(Z)-11-ヘキサデセニルアセテート、(Z)-11-テトラデセニルアセテート、(E)-11-ヘキサデセニルアセテート、(Z)-11-オクタデセニルアセテート、(E)-11-テトラデセニルアセテート、(E)-12-テトラデセニルアセテート、(Z, E)-9, 12-テトラデカジエニルアセテート、(Z, E)-9, 11-テトラデカジエニルアセテート、(Z, Z)-3, 13-オクタデカジエニルアセテート、(E, Z)-3, 13-オクタデカジエニルアセテート、および(E, Z)-4, 10-オクタデカジエニルアセテートなどを挙げることができる。

[0026] アルデヒド系化合物の具体例としては、ヘキサデカナール、(Z)-9-ヘキサデセナ

ール、(Z)-11-ヘキサデセナール、(E)-11-ヘキサデセナール、(Z)-13-オクタデセナール、および(Z, Z, Z)-9, 12, 15-オクタデカトリエナールなどを挙げることができる。

[0027] アルコール系化合物の具体例としては、(Z)-8-ドデセン-1-オール、(Z)-9-テトラデセン-1-オール、(Z)-11-ヘキサデセン-1-オール、2, 6-ジメチルオクタン-1-オール、および(Z, E)-9, 12-テトラデカジエン-1-オールなどを挙げることができる。

[0028] その他の化合物として、(Z)-13-エイコセン-10-オン、(R, Z)-(-)-5-(1-デセニル)オキサシクロペンタン-2-オン、シス-7-テトラデセン-2-オン、トランス-7-テトラデセン-2-オン、4, 6-ジメチル-7-ヒドロキシノナン-3-オン、2, 3-ジヒドロ-2, 3, 5-トリメチル-6-(1-メチル-2-ブテニル)-4H-4-オン、(3Z, 6Z, 9S, 10R)-9, 10-エポキシ-3, 6-ヘニコサジエン、(3Z, 6Z, 9S, 10R)-9, 10-エポキシ-1, 3, 6-ヘニコサトリエン、(Z)-5-テトラデセン酸メチル、14-メチル-1-オクタデセン、(Z)-3-ドデセニル(E)-2-ブテノアート、および2, 6-ジメチルオクチルホルメートなどを挙げることができる。

[0029] 結晶性鉱物に含有されるフェロモンの量に特別の制限はない。もともと、フェロモンの含有量は、フェロモンの化学的性状にもよるが、通常は、結晶性鉱物とフェロモンとの合計質量に対して、通常は、1-30質量%であり、好ましくは、2-25質量%である。

[0030] フェロモンの含有量が1質量%未満では、フェロモンの化学的性状にもよるが、フェロモンの有効期間中の作用効果が十分に発揮されず、30質量%を超えたとしても、その増量に見合う効果を期待することはできない。

[0031] この発明の徐放性フェロモン製剤には、酸化防止剤および/または紫外線吸収剤が含有されていてもよい。酸化防止剤としては、例えば、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール、ブチル化ヒドロキシアニソール、2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- $\beta$ -(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、2, 2'-メチレン-ビス-(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレン-ビス-(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4, 4'-チオビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4

, 4'-ブチルデンビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、3, 9'-ビス[1, 1-ジメチル-2-[ $\beta$ -(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ]エチル]、2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ[5, 5]ウンデカン、1, 1, 3-トリス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル)ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、テトラキス-[メチレン-3-(3', 5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、1, 3, 5-トリス(3', 5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシベンジル)-sec-トリアジン-2, 4, 6-(1H, 3H, 5H) トリオン、およびトコフェロールなどのフェノール系化合物を挙げることができる。

[0032] また、酸化防止剤としては、例えば、N-フェニル-N'-イソプロピル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジ-sec-ブチル-p-フェニレンジアミン、およびN-フェニルブチル-N-sec-ブチル-p-フェニレンジアミンなどのフェニレンジアミン系化合物、2, 5-ジ-tert-オクチルハイドロキノン、2, 6-ジドデシルハイドロキノン、および2-ドデシルハイドロキノンなどのハイドロキノン系化合物、ならびにジラウリル-3, 3'-チオジプロピオネート、ジステアリル-3, 3'-チオジラウリルチオジプロピオネート、ジミリスチン-3, 3'-チオジプロピオネート、ジステアリル-3, 3'-チオジプロピオネート、およびテトラデシル-3, 3'-チオジプロピオネートなどの有機硫黄化合物を挙げることができる。

[0033] さらに、酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、4, 4'-ブチルデン-ビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェニルジトリデシル)ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス、トリス(モノニルフェニル)ホスファイト、トリス(ジニルフェニル)ホスファイト、ジイソデシルペンタエリスリトールジホスファイト、9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-デキロキシ-9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、および2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルホスファイトなどの有機燐化合物

などを挙げることができる。

- [0034] エリソルビン酸、エリソルビン酸ナトリウム、クエン酸イソプロピル、ジブチルヒドロキシトルエン、D- $\alpha$ -トコフェノール、ノルジヒドログアヤレチック酸、ブチルヒドロキシアニソール、および没食子酸プロピルなども酸化防止剤として用いることができる。
- [0035] また、紫外線吸収剤としては、例えば、サリチル酸フェニル、サリチル酸ブチルフェニル、サリチル酸オクチルフェニルなどのサリチル酸系化合物、2, 4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、および2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノンなどのベンゾフェノン系化合物、ならびに2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3-5'-ブチルフェニル)ヒドロキシメチルフェニルベンゾトリアゾール、および2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチルメチルフェニル)ベンゾトリアゾールなどのベンゾトリアゾール系化合物などを挙げることができる。
- [0036] このような酸化防止剤および紫外線吸収剤は、それぞれ単独で用いてもよく、二者を併用してもよい。また、前記に例示した具体的化合物は、その一種を用いてもよく、二種以上を併用してもよい。これら酸化防止剤および紫外線吸収剤の使用量については特に制限はないが、通常は、フェロモン100質量部に対し、0.1〜5質量部である。
- [0037] さらに、この発明の徐放性フェロモン製剤には、その徐放性の緩急を制御することのできる徐放性制御剤として、有機溶剤を含有させてもよい。この有機溶剤としては、例えば、鉱物油または植物油などの油脂類、200〜300℃の高沸点を有する芳香族系、脂肪酸系、グリコールエーテル系、およびナフタレン系の有機溶剤を挙げることができ、中でも、1-フェニル-1-キシルエタン、およびフェノキシエタノールなどが好ましく用いられる。この有機溶剤の使用量についても特に制限はないが、通常は、フェロモン100質量部に対し、1〜10質量部である。
- [0038] この発明の徐放性フェロモン製剤は、前記結晶性鉱物を基材とし、この基材にフェロモンを含有させることによって製造することができる。
- [0039] 前記基材の一形態として、前記結晶性鉱物を粉碎して得られる粉体を挙げることができる。粉碎手段に制限はなく、衝撃式粉碎機、機械式粉碎機、およびジェット式粉



砕機などを用いて粉碎する手段が採用される。

- [0040] 衝撃式粉碎機は、回転軸に支持された外周面に、母線と平行な多数の凹凸部を周方向に連続して形成した回転子と、この回転子の外側に微小間隔を設けて嵌装された内周面に、母線と平行な多数の凹凸部を周方向に連続して形成した筒体とを備え、被粉碎物を上記微小間隔から成る粉碎室で粉碎する機械である。
- [0041] 機械式粉碎機は、高速回転するローターと多数の溝を有するライナーとから成り、相対回転によってローターとライナーとの隙間において粉碎、さらにローターの背後やライナーの溝に生じる空気の層流および渦流運動によって、粉碎する機械である。
- [0042] また、ジェット式粉碎機は、閉路を形成し、高速ジェット気流に被粉碎物を乗せて衝突板に打ちつけることによって、粉碎する機械である。いずれの粉碎機も分級機構を備えているものが好ましい。
- [0043] このような粉碎機を用いて粉碎されて得られる粉体の粒径に特に制限はないが、通常は、0.1〜150  $\mu\text{m}$ 、好ましくは、2〜20  $\mu\text{m}$ である。
- [0044] また、前記基材の他の形態としては、前記粉碎して得られる粉体に、必要により水とバインダーとを加え混練して混練物を調製し、この混練物から得られる様々な形状の成型体を挙げることができる。前記基材の他の形態としては、粉体であってもよいが、成型体の方が好ましい。
- [0045] 前記成型体の形状としては、例えば、粒状、棒状、板状などを挙げることができ、球状、中空状、円柱状、角柱状などであってもよい。これらの大きさには制限はなく、使用態様によって適宜決定される。
- [0046] 必要により用いるバインダーとしては、水溶性高分子物質が好ましく、例えば、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸、ポリアクリルアミド、ポリエチレンオキシド、ポリエチレンイミド、およびカルボキシメチルセルロースなどを挙げることができる。
- [0047] 前記粉体に加えられる水の量に特に制限はないが、粉碎物100質量部に対し、通常は、10〜20質量部である。また、混練温度および時間は、通常、10〜30℃、15〜60分間である。
- [0048] 混練機としては、ミキシングローラー、バンバリーミキサー、羽型混練機、高速二軸

連続パンバリーミキサー、および押出機型混練機などを挙げることができ、特に限定されることはない。

- [0049] 成型手段に特に制限はなく、打錠機による成型、圧縮成型、射出成型、押出成型などの成型方法が採用される。圧縮成型は、成形材料を加熱した金型のキャビティに充填し、加圧賦形する成型方法である。射出成型は、スクリーシリンダー中で加熱した成型材料を高圧で金型内に射出し賦形する成型方法である。また、押出成型は、加熱シリンダーから成型材料をスクリーで押し出し、断面形状が一定の成型体を連続的に成型する方法である。これら成型方法を使い分けることにより、また、金型を変えることにより、任意の形状の成型体を得ることができる。
- [0050] この発明の徐放性フェロモン製剤にあつては、基材である結晶性鉱物をそのまま用いることができるが、前記結晶性鉱物が焼成されていることが好ましい。この焼成に当たっては、その結晶構造が維持される条件下で焼成することが望まれる。つまり、結晶性鉱物の結晶構造が崩壊するような焼成条件を採用すべきではないという点に留意しなければならない。もともと、結晶性鉱物の結晶構造が焼成後、必ずしも完全な状態で維持されていることを要しない。たとえ部分的に結晶構造が崩壊または変形しているとしても、全体として実質的に結晶構造を有していればよい。
- [0051] 結晶性鉱物の結晶構造が維持される条件には、殊に焼成温度がきわめて重要な因子として挙げられるが、用いる結晶性鉱物の種類によって、その焼成温度は一律ではない。一般的には、結晶性鉱物がセラミックス化しない焼成温度を採用することが望まれる。
- [0052] 例えば、この発明において好ましく用いられる結晶性鉱物の代表例としてセピオライト、パリゴルスカイトおよびモンモリロナイトなどが挙げられるが、この場合の好適な焼成温度は、100〜800℃であり、さらに好ましくは、550〜700℃である。この温度範囲は、セピオライト、パリゴルスカイトおよびモンモリロナイトなどの結晶性鉱物の、焼成前後の結晶構造を電子顕微鏡によって比較観察し、試行錯誤の上、見出した温度範囲である。なお、上記焼成温度は前記代表例として例示した結晶性鉱物についての焼成温度として限定されず、結晶性鉱物一般についても適用可能な焼成温度である。

- [0053] 焼成時間に特に制限はなく、通常は、5～120分間、好ましくは、30～60分間である。長時間に亘る焼成は、結晶性鉱物の結晶構造を崩壊させることがあるので好ましくない。
- [0054] 結晶性鉱物にフェロモンを含有させる手段には、種々の手段が採用される。例えば、フェロモン中またはフェロモンを含有する溶液中に結晶性鉱物を浸漬してフェロモンを含浸させる手段、結晶性鉱物にフェロモンまたはフェロモンを含有する溶液を噴霧してフェロモンを担持させる手段などが採用され、その手段に特別の制限はない。
- [0055] このようにして、結晶性鉱物にフェロモンを含有させることによって、この発明の徐放性フェロモン製剤が製造される。この発明の徐放性フェロモン製剤は、フェロモンを含有すると共に、酸化防止剤、老化防止剤、紫外線吸収剤または徐放性制御剤を含有してもよい。これらの具体例および使用量については、前記したとおりである。
- [0056] この発明の徐放性フェロモン製剤は、前記のとおり、粉状、粒状、棒状、板状など、様々な形状とすることができ、これら形状に応じて、その適用態様および使用態様も多様である。
- [0057] すなわち、農地、山地、ゴルフ場などにおいて害虫防除が要求される地に、例えば、粉状または粒状の製剤とすれば、散布することができ、堆積することもできる。棒状の製剤とすれば、所望の地に差し込んで立設させることができ、樹木に一体的に縛束することもできる。また、板状の製剤とすれば、所望の地に敷設することができ、草木を隠蔽することもできる。さらに、いずれの形状であっても、所望の地の所定箇所に吊り下げることができる。
- [0058] また、この発明の徐放性フェロモン製剤は、前記のとおり、各種形状の成型体として用いることができることから、機械的、物理的に強固であって定型性に優れ、崩壊、型崩れなどを起こすことのない耐久性に富んだ製剤となる。
- [0059] また、この発明の徐放性フェロモン製剤は、長期間に亘って使用され、そのまま放置されたとしても、基材である結晶性鉱物自体が風化されて有用な土壌に帰し、環境を汚染することがなく、人体に対しても安全な製剤となる。
- [0060] さらに、この発明の徐放性フェロモン製剤は、結晶性鉱物を基材とすることから、その徐放性が円滑に制御され、長時間、一定量のフェロモンが均質に放出されるという

効果を奏する。その理由は定かではないが、結晶性鉱物の結晶構造が維持されていることから、その結晶格子内にフェロモンが包摂されていることに起因しているものと推測される。

- [0061] なお、フェロモンが放出し尽くした製剤は、結晶性鉱物にフェロモンを含有させる前記手段によって、再びこの発明の徐放性フェロモン製剤を製造し、使用に供することができる。

### 実施例

- [0062] 以下、実施例を挙げてこの発明をさらに詳しく説明するが、これら実施例によってこの発明はなんら限定されるものではない。

- [0063] (実施例1〜2)

表1に示す結晶性粘土鉱物それぞれ95質量部に、フェロモンとして、(Z)-8-ドデセニルアセテート(Z-8-12AC)5質量部を含浸させて製剤を製造した。なお、使用した結晶性粘土鉱物は焼成することなく、105℃で24時間、乾燥したもの(未焼成品)と、電気炉によって500℃で30分間、焼成したもの(焼成品)との二例とした。

- [0064] [表1]

| 実施例 | 構 造   | 形 態   | 群         | 鉱 物             |
|-----|-------|-------|-----------|-----------------|
| 1   | 結 晶 質 | 繊 維 状 | 鎖 状 構 造 型 | パ リ ゴ ル ス カ イ ト |
| 2   |       |       |           | セ ピ オ ラ イ ト     |

- [0065] (評価試験1)

実施例1〜2で製造された製剤各10gをシャーレに均一に広げ、40℃、無風条件下、恒温器に設置した。設置14日後、30日後にサンプリングし、ガスクロマトグラフィーにより各々についてフェロモンを定量した。その値から、フェロモン残存率(%)を算出した。結果を表2および図1に示す。表2および図1には、前記未焼成品と焼成品との双方を用いたときの結果を示している。

- [0066] [表2]

| 実施例 | 焼成<br>有無 | 初 期<br>(mg/g) | 40℃、14日 |         | 40℃、30日 |         |
|-----|----------|---------------|---------|---------|---------|---------|
|     |          |               | (mg/g)  | 残存率 (%) | (mg/g)  | 残存率 (%) |
| 1   | 無        | 45.62         | 19.45   | 42.6    | 11.28   | 24.7    |
|     | 有        | 45.21         | 32.25   | 71.3    | 29.22   | 64.6    |
| 2   | 無        | 48.65         | 23.43   | 48.2    | 18.45   | 37.9    |
|     | 有        | 49.56         | 42.67   | 86.1    | 35.73   | 72.1    |

[0067] 表2に示される結果から、焼成した結晶性粘土鉱物にフェロモンを含浸させてなる徐放性フェロモン製剤のほうが、未焼成の結晶性粘土鉱物にフェロモンを含浸させてなる徐放性フェロモン製剤よりも、フェロモンの徐放性期間が長いことを、理解することができる。

[0068] (実施例3～5)

表3に示す結晶性粘土鉱物それぞれに水を加えて混練し、得られた混練物を打錠機によって円柱状(直径10×長さ7mm)の成型体にした。次いで、この成型体95質量部に、フェロモンとして、(Z)-8-ドデセニルアセテート(Z-8-12AC)5質量部を混合し、含浸させて製剤を製造した。このとき、結晶性粘土鉱物の成型体は焼成することなく、105℃で24時間、乾燥したもの(未焼成品)と、電気炉によって500℃で30分間、焼成したもの(焼成品)との二例とした。

[0069] [表3]

| 実施例 | 鉱 物      |
|-----|----------|
| 3   | モンモリロナイト |
| 4   | パリゴルスカイト |
| 5   | セピオライト   |

[0070] (評価試験2)

実施例3～5で製造された製剤3粒を、無風条件下、40℃恒温器に設置した。設置14日後、30日後にサンプリングし、ガスクロマトグラフィーにより各フェロモンを定量した。その値から、各製剤中のフェロモン残存率(%)を算出した。結果を表4および図2に示す。

[0071] [表4]

| 実施例 | 焼成<br>有無 | 初期値<br>(mg/粒) | 14日後          |            | 30日後          |            |
|-----|----------|---------------|---------------|------------|---------------|------------|
|     |          |               | 分析値<br>(mg/粒) | 残存率<br>(%) | 分析値<br>(mg/粒) | 残存率<br>(%) |
| 3   | 無        | 52.23         | 23.74         | 45.4       | 11.28         | 21.6       |
|     | 有        | 53.80         | 36.75         | 68.3       | 27.81         | 51.7       |
| 4   | 無        | 51.26         | 23.73         | 46.3       | 13.53         | 26.4       |
|     | 有        | 51.31         | 36.79         | 71.7       | 27.96         | 54.5       |
| 5   | 無        | 48.57         | 23.51         | 48.4       | 12.14         | 25.0       |
|     | 有        | 56.21         | 38.84         | 69.1       | 31.03         | 55.2       |

## [0072] (実施例6)

セピオライトに水を加えて混練し、得られた混練物を転動造粒機を用いて直径4mmの球状に成型し、電気炉によって500℃で30分間、焼成した。このセピオライト成型体89質量部に、フェロモンとして、(Z)-11-ヘキサデセニルアセテート(Z-11-16AC)46質量部、(Z)-11-ヘキサデセナール(Z-11-16AL)46質量部および酸化防止剤と紫外線防止剤との混合物11質量部を含浸させて、徐放性フェロモン製剤であるコナガ用交信攪乱剤を製造した。

## [0073] (比較例1)

市販のコナガ用交信攪乱剤として、商品名「コナガコン」(信越化学工業株式会社製、ポリエチレンチューブにフェロモンとして、Z-11-16ACおよびZ-11-16ALを封入した製剤)を用意した。

## [0074] (評価試験3)

実施例6で製造されたコナガ用交信攪乱剤30粒と比較例1で用意した製剤10本とを、気温の異なる6～9月、11月～翌年の2月の二時期、立ち入り禁止区域とされた野外に設置し、定期的にサンプリングし、ガスクロマトグラフィーにより各コナガ用交信攪乱剤中のフェロモンを定量した。その値から、各コナガ用交信攪乱剤中のフェロモン残存率(%)を算出した。結果を表5、図3および図4に示す。表5、図3および図4における温度は、設置期間中の平均気温である。

## [0075] [表5]

|       | 実施例 6      |      |            |      | 比較例 1      |      |            |      |
|-------|------------|------|------------|------|------------|------|------------|------|
| フェロモン | Z-11-16A C |      | Z-11-16A L |      | Z-11-16A C |      | Z-11-16A L |      |
| 温度    | 25℃        | 6℃   | 25℃        | 6℃   | 25℃        | 6℃   | 25℃        | 6℃   |
| 30日後  | 72.1       | 73.6 | 54.5       | 54.1 | 50.8       | 74.6 | 20.7       | 65.3 |
| 60日後  | 50.6       | 47.6 | 18.9       | 19.8 | 37.8       | 57.6 | 1.4        | 24.9 |
| 90日後  | 45.0       | 40.5 | 13.2       | 12.7 | 16.1       | 35.1 | 0.3        | 14.2 |

[0076] 表5中における「30日後」欄、「60日後」欄、「90日後」欄それぞれの数値は、フェロモン残存率(%)である

(実施例7)

セピオライトに水を加えて混練し、得られた混練物を転動造粒機で直径10mmの球状に成型した後、電気炉によって500℃で30分間、焼成した。このセピオライト成型体90質量部に、n-ドデシルアセテート(n-12AC)10質量部を含浸させて、徐放性フェロモン製剤であるオキナワカンシャクシコメツキ用誘引剤を製造した。

[0077] (比較例2)

市販のオキナワカンシャクシコメツキ用誘引剤として、商品名「オキメラノコール」(サンケイ化学株式会社製、ポリエチレンチューブにフェロモンを封入した製剤)を用意した。

[0078] (評価試験4)

実施例7で製造されたオキナワカンシャクシコメツキ用誘引剤30粒と比較例2で用意した製剤とをそれぞれ、立ち入り禁止区域とされた圃場におけるガラスハウス内に設置した。これらを定期的にサンプリングし、ガスクロマトグラフィーにより各オキナワカンシャクシコメツキ用交信攪乱剤中のフェロモンの残存量を定量した。その値から、各オキナワカンシャクシコメツキ用交信攪乱剤中のフェロモン揮散量(mg)を算出した。結果を表6および図5に示す。

[0079] [表6]

|       | 累積揮散量 (mg) |       |       |       |
|-------|------------|-------|-------|-------|
|       | 7日後        | 21日後  | 35日後  | 49日後  |
| 実施例 7 | 61.5       | 129.1 | 189.4 | 245.1 |
| 比較例 2 | 123.1      | 303.4 | 478.6 | 546.5 |

[0080] (実施例8)

セピオライトに水を加えて混練し、得られた混練物を打錠機によって円柱状(直径10×長さ150mm)の成型体にした。この成型体を電気炉によって500℃で30分間、焼成した。このセピオライト成型体79質量部に、フェロモンとして、(Z)-11-ヘキサデセニルアセテート(Z-11-16AC)46質量部、(Z)-11-ヘキサデセナール(Z-11-16AL)46質量部および酸化防止剤と紫外線防止剤との混合物21質量部を含浸させて、徐放性フェロモン製剤であるコナガ用交信攪乱剤を製造した。

[0081] (比較例3)

市販のコナガ用交信攪乱剤として、商品名「コナガコン」(信越化学工業株式会社製、ポリエチレンチューブにフェロモンとして、Z-11-16AC、Z-11-16ALを封入した製剤)を用意した。

[0082] (評価試験5)

実施例8で製造された円柱状のコナガ用交信攪乱剤1本を、土壌表面に深さ7cm程度、挿して設置した。比較例3は、土壌固定用竹杭の先端に装着して設置した。これらを6-8月の3ヶ月間、立ち入り禁止区域とされた野外に設置し、定期的にサンプリングし、ガスクロマトグラフィーにより各コナガ用交信攪乱剤中のフェロモン残存量を定量した。その値から、各コナガ用交信攪乱剤中のフェロモン残存率(%)を算出した。結果を表7、図6および図7に示す。

[0083] [表7]

|       | 実施例 8     |           | 比較例 3     |           |
|-------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| フェロモン | Z-11-16AC | Z-11-16AL | Z-11-16AC | Z-11-16AL |
| 7日後   | 97.1      | 88.7      | 82.4      | 87.0      |
| 14日後  | 79.6      | 83.4      | 67.3      | 74.8      |
| 35日後  | 75.3      | 80.9      | 57.6      | 43.1      |
| 49日後  | 72.4      | 48.4      | 45.6      | 22.9      |
| 70日後  | 64.1      | 43.1      | 37.0      | 13.6      |

[0084] 「7日後」欄、「14日後」欄、「35日後」欄、「49日後」欄、「70日後」欄それぞれの数値は、フェロモン残存率(%)である。

産業上の利用可能性

[0085] この発明の徐放性フェロモン製剤は、気温の影響を受けることなく、一定の割合で性フェロモンを放出することができ、また、基材である結晶性鉱物自体が風化されて

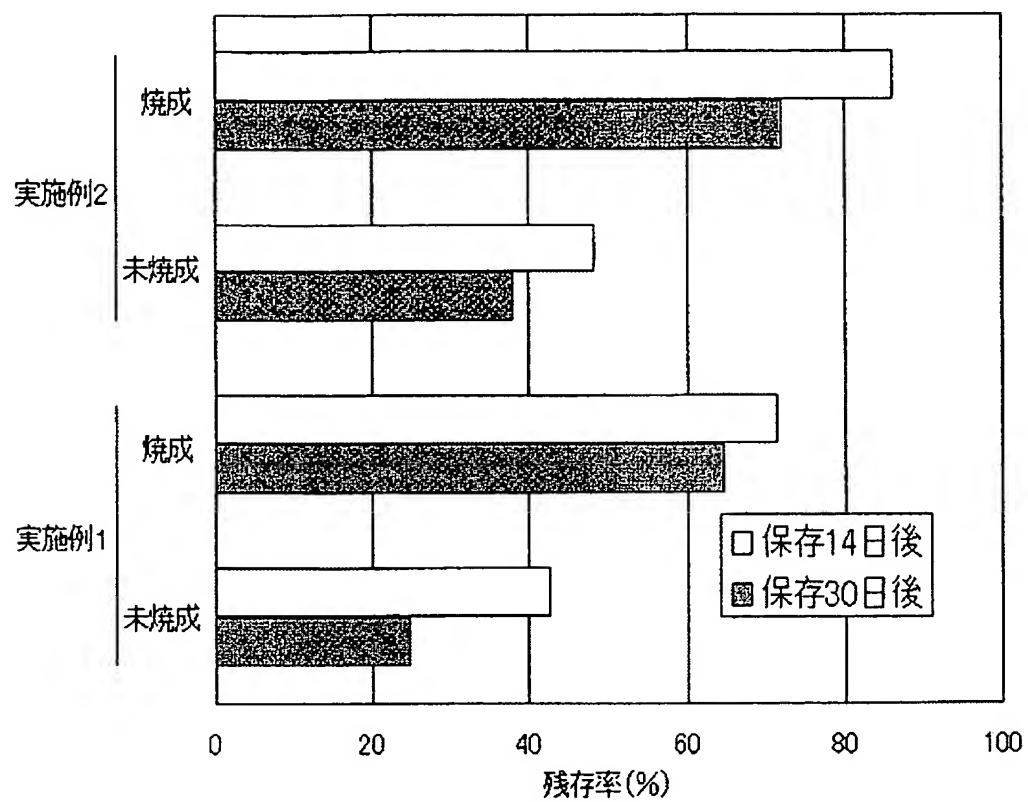


有用な土壌に帰するので、使用後に回収する手間を要せず、しかも環境を汚染することのないので、農地、山地、ゴルフ場などにおける害虫防除に寄与するところはきわめて多大である。

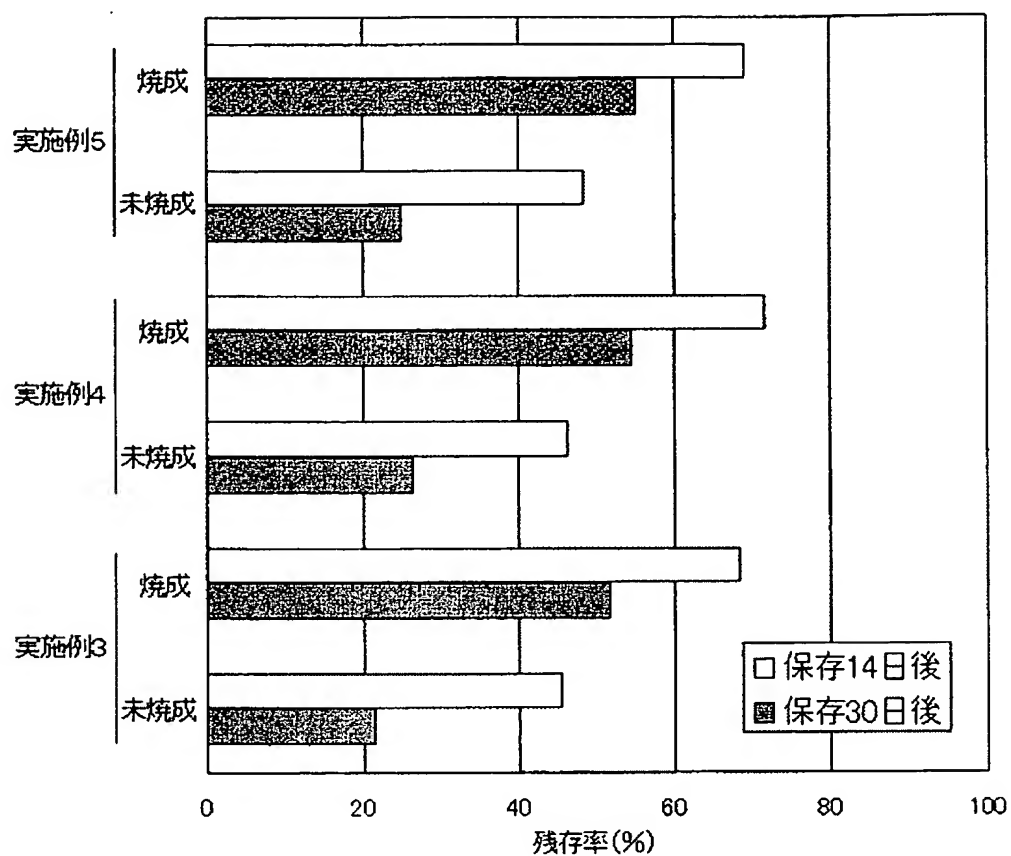
## 請求の範囲

- [1] 結晶性鉱物にフェロモンを含有させて成ることを特徴とするフェロモン徐放性製剤。
- [2] 前記結晶性鉱物が、結晶性粘土鉱物である請求項1に記載のフェロモン徐放性製剤。
- [3] 前記フェロモンが、天然フェロモンおよび／または合成フェロモンである請求項1または2に記載のフェロモン徐放性製剤。
- [4] 前記フェロモンの含有量が、前記結晶性鉱物と前記フェロモンとの合計質量に対して、1〜30質量%である請求項1〜3のいずれか一項に記載のフェロモン徐放性製剤。

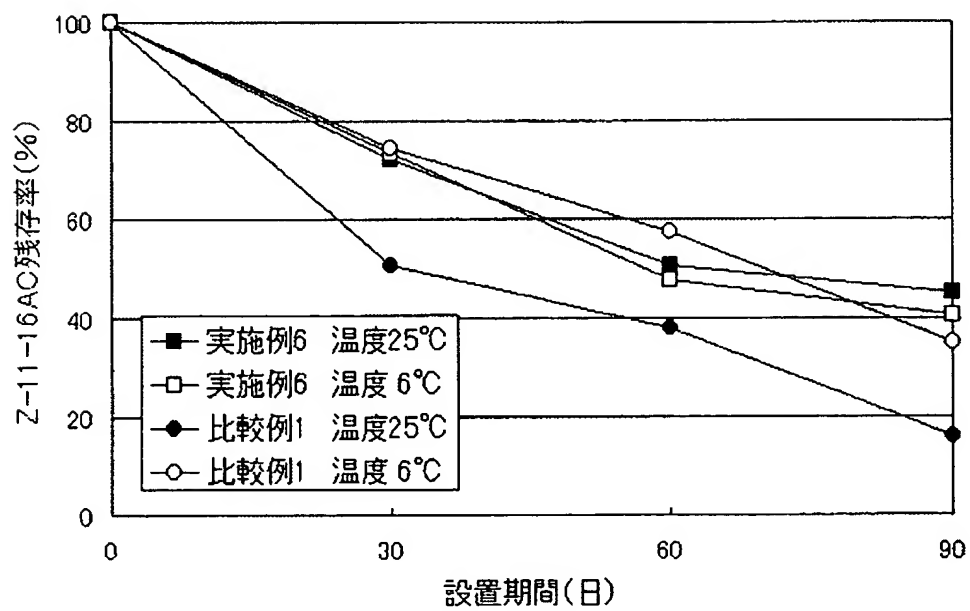
[図1]



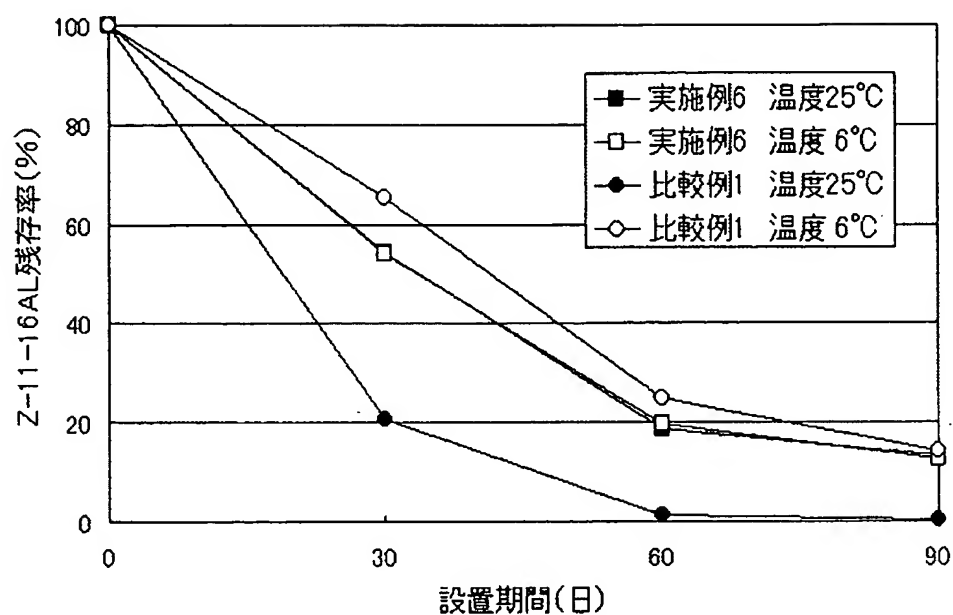
[図2]



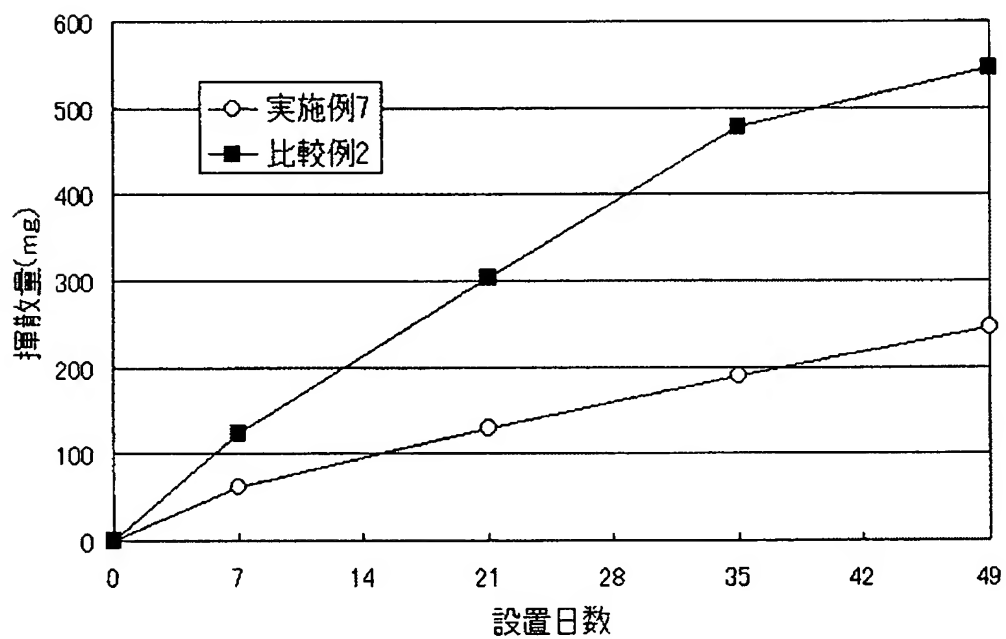
[図3]



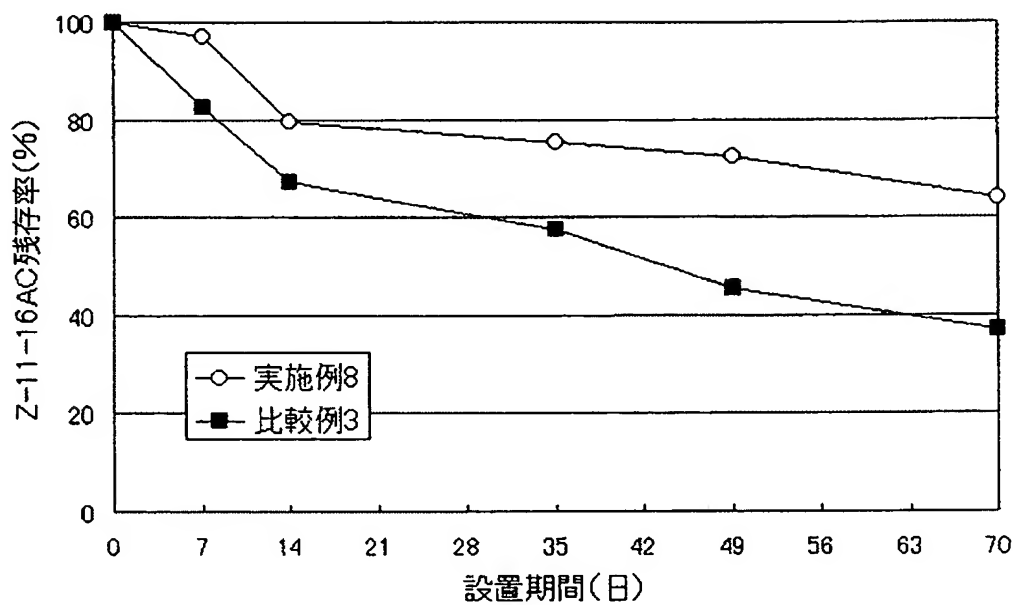
[図4]



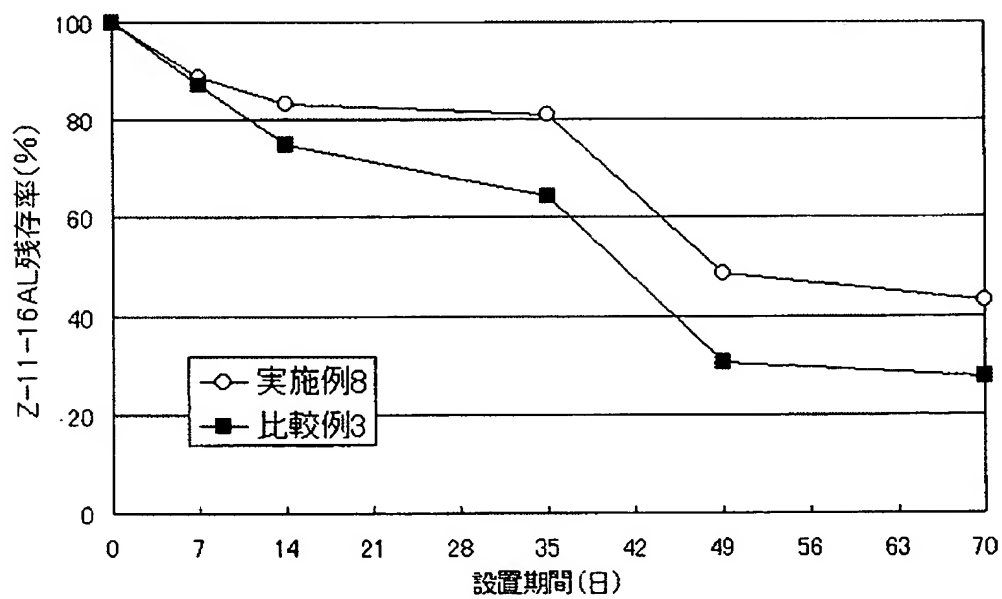
[図5]



[図6]



[図7]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/013364

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> A01N49/00, 25/18, 25/08, 35/02, 37/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> A01N49/00, 25/18, 25/08, 35/02, 37/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| X         | JP 2002-520256 A (Consejo Superior De   | 1-4                   |
| Y         | Investigaciones Cientificas),<br>09 July, 2002 (09.07.02),<br>Claims; Par. Nos. [0010] to [0011], [0016] to<br>[0019], [0027] to [0028]; examples<br>& WO 00/2448 A1 & US 6569440 B1<br>& EP 1051908 A1 | 1-4                   |
| X         | JP 2001-247410 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.),  | 1-4                   |
| Y         | 11 September, 2001 (11.09.01),<br>Par. Nos. [0010] to [0013]; examples<br>(particularly, example 3)<br>(Family: none)   | 1-4                   |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
30 November, 2004 (30.11.04)Date of mailing of the international search report  
21 December, 2004 (21.12.04)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/013364

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| X         | JP 56-104802 A (Montedison S.p.A.),  | 1-4                   |
| Y         | 20 August, 1981 (20.08.81),<br>Claims; page 4, lower left column; examples<br>& US 4323556 A & GB 2067406 A<br>& FR 2473847 A1 & DE 3044220 A1 | 1-4                   |
| Y         | JP 2001-72506 A (Okinawa-Ken),<br>21 March, 2001 (21.03.01),<br>Claims; examples<br>(Family: none)   | 1-4                   |



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>7</sup> A01N49/00, 25/18, 25/08, 35/02, 37/02

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. <sup>7</sup> A01N49/00, 25/18, 25/08, 35/02, 37/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|------------------|
| X<br>Y          | JP 2002-520256 A(コンセホ・スペリオール・デ・インベスティガシオネス・シエンティフィカス), 2002.07.09, 特許請求の範囲, [0010]-[0011], [0016]-[0019], [0027]-[0028], 実施例 & WO 00/2448 A1 & US 6569440 B1 & EP 1051908 A1 | 1-4<br>1-4       |
| X<br>Y          | JP 2001-247410 A(積水化学工業株式会社), 2001.09.11, [0010]-[0013], 実施例 (特に実施例3) (ファミリーなし)  | 1-4<br>1-4       |

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30.11.2004

国際調査報告の発送日

21.12.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

松本 直子

4 H

9546

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |  |                  |
|-----------------------|--|------------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求の範囲の番号 |
| X<br>Y                | JP 56-104802 A(モンテデイソン・エツセ・ピ・ア), 1981. 08. 20,<br>特許請求の範囲, 第4頁左下欄, 実施例<br>& US 4323556 A & GB 2067406 A & FR 2473847 A1<br>& DE 3044220 A1 | 1-4<br>1-4       |
| Y                     | JP 2001-72506 A(沖縄県), 2001. 03. 21, 特許請求の範囲, 実施例<br>(ファミリーなし)  | 1-4              |